

Рассеяние и усиление света в слое нематического жидкого кристалла

Л. М. Блинов¹⁾

Институт кристаллографии РАН, 119333 Москва, Россия

Physics Department, University of Calabria, I-87046 Rende, Italy

Поступила в редакцию 23 июня 2008 г.

Роль рассеяния света в лазерах на жидких кристаллах может быть двоякой. Оно может вызывать нежелательные потери, повышая порог генерации, или способствовать появлению необходимой для генерации обратной связи. В работе измерены спектры усиления света жидкого кристалла в изотропной и рассеивающей свет нематической фазе. Для сравнения, при близкой по мощности накачке, спектры усиления измерены и на суспензии наночастиц TiO_2 в изотропном растворителе, имеющей такую же длину свободного пробега фотонов, как и жидкий кристалл. Усиление оказалось существенно различным для двух систем, что объясняется сильно различающейся формой их диаграмм рассеяния.

PACS: 42.60.Da, 42.70.Df, 42.70.–a

По ряду причин в последнее десятилетие резко активизировались исследования лазерных эффектов в жидких кристаллах (ЖК). Во-первых, в связи с появлением новых идей, касающихся локализации света в периодических структурах [1], осмысливается значение ЖК как одномерных (холестерическая фаза [2]), так и трехмерных (голубая фаза [3]) фотонных кристаллов. Нематическая же фаза рассматривается как сильно анизотропная среда, демонстрирующая обратное когерентное рассеяние и слабую локализацию света [4, 5]. Эффект локализации света [6] – это оптический аналог андерсоновской локализации электронов в проводящих разупорядоченных кристаллах. *Сильная* локализация (то есть, захват) света обусловлена когерентным многократным рассеянием в мутных средах, где длина волны излучения соизмерима с длиной свободного пробега фотонов ($\lambda \approx l_s$). В этом случае можно наблюдать лазерную генерацию, обусловленную интерференционными эффектами (random lasing) [7]. *Слабая* локализация может считаться предвестником *сильной* и наблюдается в средах не столь мутных ($\lambda < l_s$) по угловой зависимости рассеяния строго назад [8, 9]. Это связано с тем, что для конструктивной интерференции многократно рассеянные лучи должны идти навстречу друг другу по одной и той же траектории (T -инвариантность, или симметрия по обращению времени, которая может быть нарушена, в частности, в хиральных средах [10]).

Вторая веская причина активизации лазерных исследований жидких кристаллов состоит в том, что в связи с разработкой стабильных и хорошо растворимых лазерных красителей появилась возможность получать более высокие показатели усиления лазерной среды (вплоть до 500 см^{-1} [11]) по сравнению с пионерскими работами на жидкокристаллических материалах [12]. Это открывает возможность конструирования эффективных тонкопленочных микролазеров. Главное же преимущество лазеров на нематических ЖК – это возможность управления интенсивностью и частотой генерации низким управляющим напряжением. При этом можно использовать либо искусственно созданную распределенную обратную связь [13, 14], либо генерацию на Фабри-Перо структуре с утечкой излучения в стекла, ограничивающие ЖК слой (так называемые leaky modes) [15]. В этих случаях лазерное излучение распространяется в плоскости тонкопленочной структуры, и возникает вопрос о роли рассеяния в усиливающей среде протяженностью в несколько миллиметров. С одной стороны, рассеяние приводит к потерям, снижающим коэффициент усиления и повышающим порог генерации, а с другой стороны, рассеяние может создать обратную связь и привести к возникновению генерации [7, 16].

Недавно мы провели измерения поляризационных спектров усиления света нематической смеси E7 (BDH), допированной красителем [17], однако вопрос о роли рассеяния в усилении остался открытым. В данной работе приводятся результаты экспериментов на изотропной фазе той же смеси для сравнения

¹⁾e-mail: blinov@fis.unical.it

с рассеивающей нематической фазой, а также с суспензией наночастиц в изотропной среде. Кроме того, измерены средние длины свободного пробега фотона l_s между индивидуальными актами рассеяния. Последние необходимы для адекватного сопоставления показателей усиления в упомянутых рассеивающих средах (то есть коэффициентов отрицательного поглощения g в экспоненте e^{gl} , где l – длина светового пути в усиливающей среде).

Длина l_s обычно измеряется по пропусканию τ луча света в условиях слабой экстинкции (баллистический режим) и малой апертуры детектора. В схеме на рис.1 луч гелий-неонового лазера 1 фокусирует-

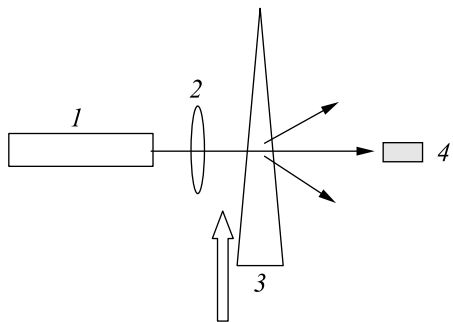


Рис.1. Схема измерений средней величины пробега фотона l_s (см. обозначения в тексте)

ся длиннофокусной линзой 2 на детектор 4. На пути луча располагается стеклянная ячейка 3 с рассеивающим слоем, имеющая форму клина. Передвигая клин с помощью микрометрического винта, можно менять толщину слоя d и находить l_s из соотношения

$$\tau = \tau_0 \exp(-d/l_s), \quad (1)$$

где τ_0 – пропускание той же ячейки, заполненной чистым глицерином. Для измерений τ жидкого кристалла внутренние стенки ячейки покрывались слоем полиимида и затем натирались так, чтобы получить однородную ориентацию ЖК с направлением преимущественной молекулярной ориентации (директора) вдоль длинной стороны клина.

Результаты измерений l_s для смеси E7 показаны на рис.2а и б для поляризации падающего луча параллельно (а) и перпендикулярно (б) директору. Разброс точек значителен, так как даже при относительно малой толщине слоя (< 200 мкм) не удается избежать дефектов структуры полностью. Линейная аппроксимация дает $l_{s\parallel} = 1.65 \pm 0.08$ и $l_{s\perp} = 1.93 \pm 0.08$ мм. Для неориентированной смеси в плоской кювете толщиной 1 мм эта величина значительно ниже ($l_s = 0.52$ мм), что говорит о качественной ориентации слоя ЖК в клине. Заме-

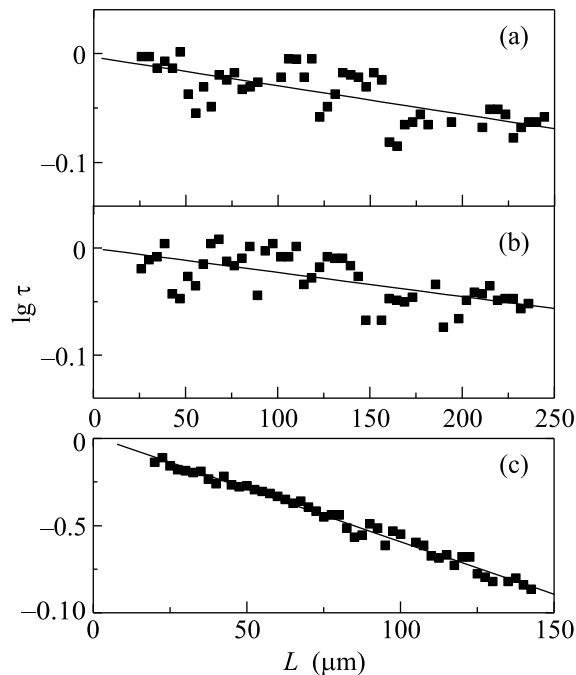


Рис.2. Логарифм пропускания света в зависимости от толщины клиновидной ячейки. Графики (а) и (б) относятся к жидкому кристаллу E7 с ориентацией директора параллельно (а) и перпендикулярно (б) электрическому вектору света. График (с) относится к суспензии наночастиц TiO_2 в глицерине

тим, что в литературе практически нет экспериментальных данных по величинам l_s в ЖК. Значения $l_{s\parallel} = 0.7$ и $l_{s\perp} = 0.8$ мм были получены для “классического” жидкого кристалла МВВА, ориентированного магнитным полем [18]. Они заметно ниже наших, что говорит о плохой ориентации пристеночных слоев ЖК в недостаточно сильном магнитном поле, приводящей к большому количеству дефектов в объеме слоя. Таким образом, результаты, полученные здесь для смеси E7, весьма популярной в оптических экспериментах, представляют самостоятельный интерес, поскольку оказалось, что длина свободного пробега фотонов в жидких кристаллах может быть значительной, как и предсказывается теорией [20].

Для сравнения с жидким кристаллом была подобрана такая концентрация суспензии наночастиц двуокиси титана ($1.3 \cdot 10^{-4}$ по массе в глицерине), которая имела бы величину l_s , близкую к приведенным выше значениям. Частицы TiO_2 (Aldrich) имеют номинальный диаметр 50 нм (с примесью более крупных), поэтому их концентрацию можно указать лишь приблизительно ($10^{11} - 10^{12} \text{ см}^{-3}$). Для этой суспензии, по данным рис.2с, получено значение $l_s =$

$= 0.71 \pm 0.01$ мм, то есть промежуточное между l_s ориентированной и неориентированной смеси E7.

Для измерения спектров показателей усиления ЖК использована плоская ячейка толщиной 27 мкм, образованная двумя стеклами, обработанными как сказано выше. Ячейка заполнена смесью E7, допированной красителем DCM (Aldrich), и облучается с фасада светом второй гармоники импульсного лазера на алюмо-иттриевом гранате (Surelite-II, Continuum) с вектором поляризации \mathbf{p}_y параллельным директору \mathbf{L}_y , как показано на рис.3. Длина волны и длитель-

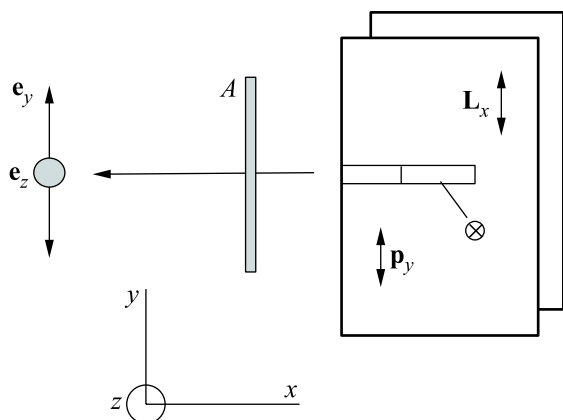


Рис.3. Схема измерений спектров показателя усиления света (см. пояснения в тексте)

ность импульса лазера равны соответственно 532 нм и 10 нс. Облучаемая зона, обозначенная символом \otimes и имеющая размеры 7×1.6 мм, может наполовину перекрываться заслонкой. Спектр усиленного спонтанного излучения проходит путь длиной либо $l = 7$ мм, либо $l/2 = 3.5$ мм, и соответствующие интенсивности на выходе I_l и $I_{l/2}$ регистрируются спектрометром (Avaspec-2048). С помощью анализатора A можно определять поляризацию выходящего излучения \mathbf{e}_y или \mathbf{e}_z . При этом торцы стекол закраснены, чтобы исключить из наблюдения ту часть излучения, которая уходит в стекла [15]. Спектр показателя усиления находится по формуле [19]

$$g(\lambda) = \frac{2}{l} \ln \left(\frac{I_l(\lambda)}{I_{l/2}(\lambda)} - 1 \right), \quad (2)$$

Для получения спектров $g(\lambda)$ суспензии наночастиц TiO_2 последняя допировалась красителем Rhodamine-640 (Exciton), и использовалась та же схема (рис.1), но со стандартной кюветой толщиной 1 мм.

Результаты измерений показаны на рис.4. Все кривые измерены при почти одинаковой мощности накачки в диапазоне 3.1–3.8 мДж на импульс или 2.8–

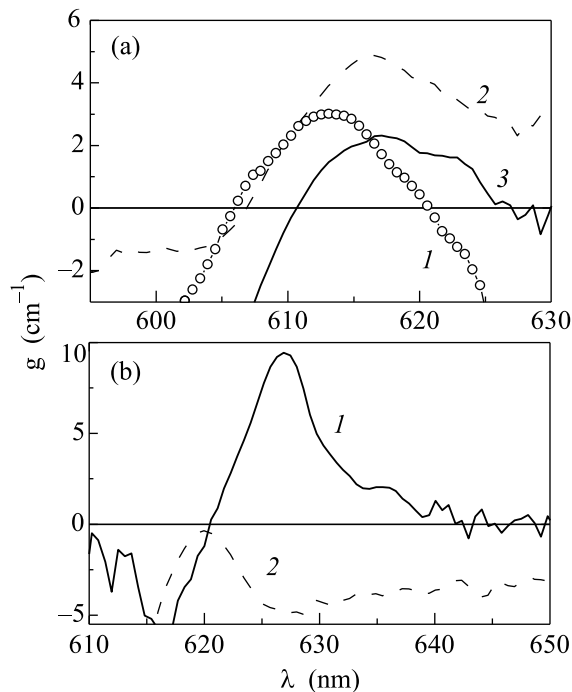


Рис.4. Спектры показателя усиления $g(\lambda)$ жидкого кристалла E7 (a) и суспензии наночастиц TiO_2 в глицерине (b) допированных красителями. На графике (a) показаны спектры изотропной фазы (кривая 1) и нематической фазы с векторами поляризации усиленного света \mathbf{e}_z (кривая 2) и \mathbf{e}_y (кривая 3), показанными на рис.3. На графике (b) показаны спектры $g(\lambda)$ раствора красителя в чистом глицерине (кривая 1) и того же раствора с добавлением наночастиц (кривая 2)

3.4 МВт/см², близкой к порогу насыщения усиления. Неожиданно обнаружилась большая разница в поведении суспензии частиц и жидкого кристалла. Из-за рассеяния на частицах, см. рис.4b, кривая 2 полностью переместилась в отрицательную область значений $g(\lambda)$, то есть даже малая концентрация частиц подавляет усиление красителя в чистом глицерине (кривая 1). Напротив, показатель усиления смеси E7 практически не уменьшился при переходе от изотропной фазы к рассеивающей анизотропной фазе: кривая 1 на рис.4a попадает между кривыми 2 и 3, относящимися к разной поляризации излучения, усиленного жидким кристаллом. Напомним, что в этом эксперименте длина пути усиливаемого луча в ячейке ($l = 7$ мм) заметно превышает найденные выше длины свободного пробега $l_s < 2$ мм. В таких случаях обычно наблюдается диффузионный режим рассеяния с потерей когерентности луча, прошедшего образец [20].

Причину различия в поведении двух систем можно увидеть в различии угловых диаграмм рассеяния,

показанных на рис.5 для жидкого кристалла (кривая 1) и суспензии малых частиц (кривая 2). Диа-

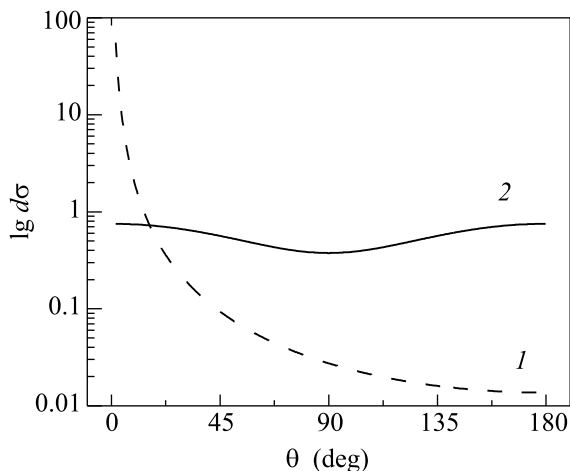


Рис.5. Угловые характеристики дифференциального сечения рассеяния жидкого кристалла (кривая 1) и раствора малых частиц (кривая 2) в соответствии с формулами (3) и (4). Масштабы подобраны так, что интегральные сечения в обоих случаях одинаковы

граммы построены по известным формулам дифференциального сечения однократного рассеяния $d\sigma$ в телесный угол Ω в зависимости от угла θ , отсчитываемого от направления распространения луча (в данном случае речь опять идет о рассеянии и пропускании света в отсутствие усиления). Для объема V рассеивающего жидкого кристалла при равенстве модулей упругости $K_1 = K_2 = K_3 = K$ имеем [21]:

$$d\sigma_{LC} = V \left(\frac{\varepsilon_a \omega^2}{4\pi c^2} \right)^2 \frac{k_B T}{K q^2} d\Omega \quad (3)$$

$$q = 2 \left(\frac{\omega \varepsilon^{1/2}}{c} \right) \sin \frac{\theta}{2}.$$

Здесь ω и c соответственно угловая частота и скорость света, ε_a – анизотропная часть диэлектрической проницаемости ε , k_B – постоянная Больцмана, T – температура, q – вектор рассеяния. Для рассеяния на N частицах (релеевское рассеяние [22]) имеем

$$d\sigma_{pt} = \frac{N}{2} \left(\frac{\alpha \omega^2}{c^2} \right)^2 (1 + \cos^2 \theta) d\Omega, \quad (4)$$

где α – поляризуемость частицы.

На графике соответствующие сечения приведены в масштабах, подобранных так, чтобы интегральные сечения $\int_{\theta_c}^{\pi} d\sigma$ для двух систем были бы одинаковы (поскольку интеграл имеет особенность при $\theta = 0$, обрезание кривой 1 выполнено при угле $\theta_c = 1.8^\circ$,

что соответствует угловой апертуре нашего фотоприемника). Равенство интегральных сечений, то есть полных потерь на рассеяние, означает равенство пропускания τ и, следовательно, длины l_s в формуле (1). Именно последнее условие и соответствует нашему подбору концентрации наночастиц в суспензии.

Рис.5 позволяет сделать следующее заключение. При равенстве оптического пропускания непоглощающего слоя нематического ЖК и суспензии наночастиц, то есть интегрального рассеяния двух систем, свет рассеивается *частицами* по всем направлениям, грубо говоря, равномерно, в то время как в *жидком кристалле* свет в основном уходит вперед, в конус углов $\theta < 15^\circ$. Например, для предельно малого угла рассеяния ($\theta_c = 1.8^\circ$) рис.5 дает отношение сечений $d\sigma_{LC}/d\sigma_{pt} = 73$. В терминах так называемой транспортной длины при многократном рассеянии можно сказать, что в ЖК она значительно больше l_s . Важно, что рассеянный вперед свет (даже с потерей когерентности [20]) может быть использован для дальнейшего усиления, особенно в волноводном режиме. Это очень благоприятный фактор для использования нематических ЖК в управляемых электрическим полем усилителях и генераторах света. Однако рассеяние назад, наоборот, в ЖК оказывается слабым, что должно вызывать дополнительные трудности в экспериментах по обратному когерентному рассеянию и локализации света. В то же время, на расстояниях l (7 мм) $> l_s$ ($\approx 1 \text{ мм}$) многократное рассеяние может изменить наши оценки, хотя не столь уж сильно, как показывает анализ [23], тем более, что поперечный размер нашей ячейки всего лишь 27 мкм . В нашем случае пробного луча нет, но когерентное рассеяние назад с усилением обоих лучей, распространяющихся вдоль оси x навстречу, должно иметь место [24]. В принципе это приводит к появлению обратной связи и даже возможности генерации, если выполнено пороговое условие на равенство показателей усиления и потерь. Однако для такого анализа нужны дополнительные эксперименты.

Автор благодарен коллегам из лаборатории жидких кристаллов Института кристаллографии и Университета Калабрии за полезные обсуждения работы на семинарах, а Т. Руджиеро (Т. Rugiero) – за помощь в эксперименте. Работа частично финансируется в рамках проекта ОФН РАН “Лазерные системы на основе новых активных материалов”.

1. J. D. Joannopoulos, R. D. Mead, and J. N. Win, *Photonic Crystals*, Princeton Univ. Press., Princeton, 1995.

2. V.I. Kopp, Z.-Q. Zhang, and A. Genack, *Progr. Quantum. Electron.* **27**, 369 (2003).
3. W. Cao, A. Munos, P. Pallfy-Muhoray, and B. Taher, *Nature Mater.* **1**, 111 (2002).
4. Д. В. Власов, Л. А. Зубков, Н. В. Орехова, В. П. Романов, *Письма в ЖЭТФ* **48**, 86 (1988).
5. R. Sapienza, S. Mujumdar, C. Cheung et al., *Phys. Rev. Lett.* **92**, 033903-1 (2004).
6. S. John, *Physics Today*, May, 32 (2001).
7. H. Cao, *Waves Random Media* **13**, R1 (2003).
8. Y. Kuga and A. Ishimura, *J. Opt. Soc. Am. A* **1**, 831 (1984).
9. D. S. Wirmsa, P. Bartolini, A. Lagendijk, and R. Righini, *Nature* **390**, 671 (1997).
10. А. А. Голубенцев, *ЖЭТФ* **86**, 47 (1984).
11. Н. М. Штыков, М. И. Барник, Л. М. Блинов и др., *Письма в ЖЭТФ* **85**, 734 (2007).
12. И. П. Ильчишин, Е. А. Тихонов, В. Г. Тищенко, М. Т. Шпак, *Письма в ЖЭТФ* **32**, 27 (1980).
13. T. Matsui, M. Ozaki, and K. Yoshino, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 422 (2003).
14. L. M. Blinov, G. Cipparrone, A. Mazzulla et al., *Appl. Phys. Lett.* **90**, 131103 (2007).
15. L. M. Blinov, G. Cipparrone, P. Pagliusi et al., *Appl. Phys. Lett.* **89**, 031114 (2006).
16. В. С. Летохов, *ЖЭТФ* **53**, 1442 (1967).
17. L. M. Blinov, G. Cipparrone, V. V. Lazarev et al., *Opt. Express* **16**, 6631 (2008).
18. D. Langevin and M.-A. Bouchiat, *J. Physique (Paris)* **36**, Colloq. C1, C1-197 (1975).
19. C. V. Shank, A. M. Dienes, and W. T. Silfvast., *Appl. Phys. Lett.* **17**, 307 (1970).
20. А. Ю. Вальков, В. П. Романов, *ЖЭТФ* **90**, 1264 (1988).
21. P. G. De Gennes and J. Prost, *The Physics of Liquid Crystals*, Clarendon, Oxford, 1994.
22. C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, John Wiley & Sons, New York, 1983, Ch.5.
23. B. Van Tigelen and H. Stark, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 1017 (2000).
24. D. S. Wirmsa, M. P. van Albada, and A. Langendijk, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1739 (1995).